

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number : 03-273087
 (43) Date of publication of application : 04.12.1991

(51) Int.Cl. C09K 11/06
 C08G 61/02
 C08G 61/12
 C08G 73/00
 H05B 33/14

(21) Application number : 02-075225
 (22) Date of filing : 22.03.1990

(71) Applicant : SUMITOMO CHEM CO LTD
 (72) Inventor : NAKANO TSUYOSHI
 DOI HIDEJI
 NOGUCHI MASANOBU
 ONISHI TOSHIHIRO

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain a thin organic electroluminescent element readily by spin coating or casting, by employing as a charge transfer material a specific conductive polymer in which aromatic rings and bonding groups are alternately combined.

CONSTITUTION: In an organic electroluminescent element in which a luminescent layer and a charge transfer layer are provided between a pair of electrodes, at least one of which being transparent or translucent, a conductive polymer having a repeating unit represented by Ar-B transparent or translucent, a conductive polymer having a repeating unit represented by Ar-B (Ar: an aromatic hydrocarbon group with 6 or more carbon atoms or a heterocyclic aromatic hydrocarbon group with 4 or more carbon atoms; B: CH=CH or NH) is employed for the charge transfer layer. Examples of such conductive polymer include poly-p-phenylenevinylene, poly-2,5-dialkyl-p-phenylenevinylene, poly-2,5-dialkoxy-p-phenylenevinylene, poly-2,5-thienylenevinylene and polyaniline.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

⑯日本国特許庁(JP)

⑩特許出願公開

⑫公開特許公報(A)

平3-273087

⑬Int.Cl.⁵

C 09 K 11/06
C 08 G 61/02
61/12
73/00
H 05 B 33/14

識別記号

N L F
N L J
N T B

府内整理番号

Z
7043-4H
8215-4J
8215-4J
8830-4J
8815-3K

⑭公開 平成3年(1991)12月4日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全6頁)

⑮発明の名称 有機エレクトロルミネッセンス素子

⑯特 願 平2-75225

⑰出 願 平2(1990)3月22日

⑱発 明 者 中 野 強 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内
⑲発 明 者 土 居 秀 二 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内
⑳発 明 者 野 口 公 信 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内
㉑発 明 者 大 西 敏 博 茨城県つくば市北原6 住友化学工業株式会社内
㉒出 願 人 住友化学工業株式会社 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号
㉓代 理 人 弁理士 諸石 光熙 外1名

明細書

1. 発明の名称

有機エレクトロルミネッセンス素子

2. 特許請求の範囲

(1) 少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に発光層および電荷輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、電荷輸送層として一般式(I)

-Ar-B-(I)

Ar: 炭素数6以上の芳香族炭化水素基、または炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、

B: -CH=CH-基あるいは-NH-基

で示される繰り返し単位を有する導電性高分子を用いることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子

(2) 導電性高分子がポリ-p-フェニレンビニレン、ポリ-2,5-ジアルキル-p-フェニレンビニレン、ポリ-2,5-ジアルコキシ-p-フェニレンビニレン、ポリ-2,5-チエニレンビニレンま

たはポリアニリンである請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものであり、詳しくは、作製方法が簡便で安価な各種表示装置の発光体として用いられる有機エレクトロルミネッセンス素子と、その作製方法に関するものである。

[従来の技術]

有機蛍光材料を用いたエレクトロルミネッセンス素子(以下EL素子という)は、無機EL素子に比べ、駆動電圧が低くて輝度が高く、どのような色の発光も容易に得ることができるという特徴があり、多くの試みが報告されていた。しかしながら、電極から有機物発光層へキャリアを注入しにくいために、低輝度であった。これを解決するためにTangらは、有機物発光層に感光体として用いられていた有機物正孔輸送材料を積層した2層構造を作製し、高効率、高輝度のEL素子を実

現させた（特開昭59-194393号公報）。さらに、それ以後、有機物電子輸送材料と有機物正孔輸送材料で有機物発光層を挟み込んだ3層構造の素子〔ジャパン・ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス（Jpn. J. Appl. Phys.）27, L269(1988)〕や、発光層に種々の色素をドーピングすることにより種々の色のEL発光素子が作製されている〔ジャーナル・オブ・アプライド・フィジックス（J. Appl. Phys.）第65巻、3610頁(1989年)〕。

〔発明が解決しようとする課題〕

これまで報告してきた有機物EL素子は発光層や電荷輸送層を真空中で蒸着することにより、作製されていた。しかしながら、真空蒸着法では大量生産に向かず、また大面積の素子を作製するには限度がある。また、EL素子をLCDなどの非発光性のバックライト照明として用いる場合、大面積化の要求は大きく大量生産も必要である。

それに関して、ポリビニルカルバゾールを代表とした高分子半導体にペリレンやトリフェニルブタジエンなどの蛍光物質を分散させたものをスピ

ンコーティングしてEL素子の発光層にする試みがある（Polymer., 24, 748(1983)）が、膜の強度や均一な発光面を得るのに問題がある。

〔課題を解決するための手段〕

本発明者らは、導電性高分子の応用について鋭意検討した結果、共役鎖が十分に長いものは、キャリアの移動度が高く、スピンドルティング法やキャスティング法等によって簡便に薄膜化が可能な電荷輸送材料として用いることができることを見い出し、本発明に到達した。

すなわち、本発明は、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に発光層および電荷輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、電荷輸送層として一般式（I）



Ar：炭素数6以上の芳香族炭化水素基、または炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、

B：-CH=CH-基あるいは-NH-基

で示される繰り返し単位を有する導電性高分子を

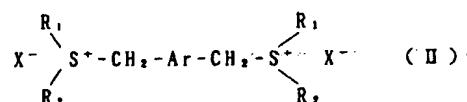
用いることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することにある。

以下に本発明によるEL素子について詳細に説明する。

本発明に用いる一般式（I）に示す導電性高分子は、芳香環と結合基が交互に結合した高分子である。但し、電荷輸送材として用いる場合には、比較的共役鎖長の長いものが好ましい。

導電性高分子の合成法としては特に限定されないが、例えば次に述べるようないくつかの方法を用いることができる。

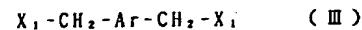
特開平1-254734号公報に記載されているスルホニウム塩分解法では一般式（II）



（Arは炭素数6以上の芳香族炭化水素基、または炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、R¹, R³は炭素数1～8の炭化水素基、X⁻は対イオンを表す。）

で示されるモノマーを水溶液中、0℃付近でアルカリと反応させることにより得られる、側鎖にスルホニウム塩を有する高分子中間体、あるいはそれをアルコール溶媒と反応させて得られる、アルコキシ基を側鎖に有する高分子中間体を熱処理することにより一般式（I）に示される導電性高分子を得ることができる。

特開昭59-199746号公報に記載の脱ハロゲン化法では一般式（III）



（Arは上記と同様なものを表し、X₁はハロゲンを表す。）で示されるジハロゲン化合物を溶液中でチープトキシカリウム等のアルカリにより縮合することにより、導電性高分子を得ることができる。

また、本発明に用いる一般式（I）の導電性高分子の内でBがビニレン基の場合は、炭素数6以上の芳香族炭化水素、または炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素であり、具体的にはArが無置換のものはp-フェニレン、2,5-ジアルキル-

p-フェニレン、2,5-ジアルコキシ-p-フェニレン、2,5-チエニレン、2,6-ナフタレンジイル、5,10-アントラセンジイルが例示され、好ましくはp-フェニレンである。また、核置換芳香族炭化水素基としては炭素数1～22の炭化水素基または炭素数1～22のアルコキシ基を1ないし2個核置換したものが好適に用いられる。置換基である炭素数1～22の炭化水素基置換基としてはメチル、エチル、プロピル、ブチル、ベンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ラウリル、オクタデシル基などが例示される。また、炭素数1～22のアルコキシ基としてはメトキシ、エトキシ、ブロピルオキシ、ベンチルオキシ、ヘキシルオキシ、ヘプチルオキシ、オクチルオキシ、ラウリルオキシ、オクタデシルオキシ基等が例示される。核置換芳香族基について、より具体的にはモノメチル-p-フェニレン、モノメトキシ-p-フェニレン、2,5-ジメチル-p-フェニレン、2,5-ジメトキシ-p-フェニレン、モノエチル-p-フェニレン、2,5-ジエトキシ-p-フェニレン、2,5-

-ジエチル-p-フェニレン、モノブチル-p-フェニレン、モノブトキシ-p-フェニレン、モノブチル-p-フェニレン、2,5-ジブトキシ-p-フェニレン、2,5-ジヘプチル-p-フェニレン、2,5-ジヘプトキシ-p-フェニレン、2,5-ジオクチル-p-フェニレン、2,5-ジオクトキシ-p-フェニレン、2,5-ジラウリル-p-フェニレン、2,5-ジラウリルオキシ-p-フェニレン、2,5-ジステアリル-p-フェニレン、2,5-ジステアリルオキシ-p-フェニレン等が例示される。

また、炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素基としては複素5員環が好ましく、2,5-チエニレン、2,5-フランジイル、2,5-ビロールジイルあるいはそれらの3位かつ／あるいは4位への置換体が例示される。より好ましくは、2,5-チエニレン、3-C₁₋₂-アルキル-2,5-チエニレンである。

最も好ましくはArがp-フェニレン、2,5-ジC₁₋₂アルキル-p-フェニレン、2,5-ジC₁₋₂

アルコキシ-p-フェニレン、2,5-チエニレンである。

本発明に使用の導電性高分子のうちで、Bが-NH-の場合は、アニリン又はアニリン誘導体を公知の方法で電解酸化重合、あるいは化学酸化重合することにより得られるポリアニリンおよびその誘導体が好ましい。ポリアニリンおよびその誘導体を溶媒に溶解させるには、重合後、アルカリ溶液で処理することが好ましい。アルカリとしては水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、アンモニア水、ヒドラジンなどが用いることができる。

上記の高分子中間体または導電性高分子を薄膜化する方法としてはスピンドルコート法、キャスト法などの方法で均一な薄膜を得るには、その分子量は十分高いことが必要である。重合度は5以上であり、より好ましくは、重合度10～50000である。具体的にはゲルバーミエションクロマトグラフィーによる分子量測定において分子量2800の標準ポリスチレンに相当する溶媒溶出位置以前に溶出する高分子量を有するものが効果的である。

スルホニウム塩分解法で得られる高分子中間体を用いる場合には共役系高分子に転換するために側鎖の脱離処理を行う。脱離処理として、光エネルギー、熱を与える方法が一般的であるが、加熱処理が好ましい。側鎖の熱脱離処理によって共役鎖長を形成させる際、熱処理温度によって共役鎖長を規定できる。すなわち、ある一定の温度以下であれば熱処理温度が高いほど、共役鎖長が長くなる。したがって、熱処理温度としては電荷輸送材料に用いる場合は高温加熱処理を行う。具体的には200℃～400℃で熱処理を行うのが好ましい。

熱処理時間については、側鎖の脱離反応が起こる時間であれば特に制限はなく、一般的には10分～20時間、好ましくは30分～8時間程度である。熱処理する際の雰囲気については、高分子フィルムの変質が起こらない雰囲気、特に酸素、空気による酸化反応が起こらない雰囲気であれば特に限定されず、一般的にはN₂、Ar、He等の不活性ガス雰囲気であり、また真空下あるいは不活性媒体であってもよい。

高分子中間体スルホニウム塩の対イオン X^- については、 Cl^- 、 Br^- 等のハロゲンイオン、さらにそのハロゲンイオンを置換することによって、 BF_4^- 、 p -トルエンスルホン酸イオン等の化合物イオンとすることもできる。対イオンの種類によって高分子中間体スルホニウム塩の性質は大きく異なり、ハロゲンイオンを例にとれば Cl^- よりも Br^- が対イオンである方が熱脱離反応が起きやすい。対イオンが BF_4^- の場合には N,N -ジメチルホルムアミド等の有機溶媒可溶となり、 p -トルエンスルホン酸イオンの場合には高分子スルホニウム塩中間体側鎖をアルコキシ基化することが可能である。

本発明のEL素子の構造を第1図に示す。EL素子の製造過程で用いる透明な薄膜電極としては導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用いられる。この電極の材料として具体的には、インジウム・スズ・オキサイド(ITO)酸化スズ(NESA)、Au、Pt、Ag、Cu等が用いられ、膜厚としては $50\text{ \AA} \sim 1\text{ \mu m}$ 程度、好ましくは $100\text{ \AA} \sim 500\text{ \AA}$ 程度であり、作製方法としては、真空蒸着法、

スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。

導電性高分子の電荷輸送層を作製する際、一般式(I)で示される導電性高分子あるいはその高分子中間体の溶液を電極上にスピンドルティング法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等を用いて薄膜化する。膜厚としては、 $50\text{ \AA} \sim 10\text{ \mu m}$ 、電流密度を上げて発光効率を上げるために好ましくは $100\text{ \AA} \sim 1\text{ \mu m}$ である。

なお、高分子中間体を薄膜化した場合は、その後に熱処理を行って導電性高分子に変換させる。

また、導電性高分子に従来の電子写真で電荷輸送材料として使用されている材料を混合して用いてもよい。これらの電荷輸送材料としてトリフェニルアミン系等が例示される。

本発明において使用の発光層としては特に限定されず、例えば特開昭57-51781、同59-194393号公報に記載されているもの等、公知のものが使用可能である。

本発明において、発光層、電荷輸送層は、それ

ぞれ化合物単独で用いるが、さらに公知の電荷輸送材料や発光材料と組み合わせて使用してもよい。すなわち、本発明における導電性高分子の電荷輸送層や公知の電荷輸送体（例えば、トリフェニルジアミン誘導体、ペリレン誘導体など）と組み合わすことができ、また、本発明における導電性高分子の電荷輸送層は、公知の発光体（トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム縮合多環化合物及びその誘導体等）と組み合わせることもできる。

また、電荷輸送層と発光層は（発光層／電荷輸送層）または（電荷輸送層／発光層）という2層の組み合わせの他に、（電荷輸送層／発光層／電荷輸送層）という3層の組み合わせの構造をとることもできる。3層の場合の2つの電荷輸送層は異なるった材料であってもよい。

すなわち、本発明の有機EL素子の構造の一例（電荷輸送層／発光層／電荷輸送層）を具体的に示すと第1図のように、透明基板1上に透明電極2を設け、さらにその上に電荷輸送層3、発光層

4、電荷輸送層5および電極5を設けた構造をしている。

本発明のEL素子の製造過程で用いる電子注入陰極材料としては、Al、In、Mg、Mg-Ag合金、In-Ag合金、グラファイト薄膜等のイオン化エネルギーの小さい金属が用いられる。膜厚としては、 $50\text{ \AA} \sim 1\text{ \mu m}$ の素子をできる限り薄くするために好ましくは $500\text{ \AA} \sim 1000\text{ \AA}$ で、作製方法としては真空蒸着法、スパッタリング法等が用いられる。

〔発明の効果〕

本発明のEL素子における電荷輸送層の材料は熱的に安定であり、導電性高分子あるいはその中間体が有機溶媒に可溶であり賦形性に富み、素子作製が容易に行える。

本発明によるEL素子によれば、バックライトとしての面状光源、フラットパネルディスプレイ等の装置としての好適に使用される。

〔実施例〕

下記に本発明の実施例を示し、さらに詳しく説明する。ただし、本発明は以下の実施例によって

何ら制限されるものではない。

実施例 1

モレキュラー・クリスタルス・アンド・リキッド・クリスタルス (Mol.Cryst.Liq.Cryst.) パートE, 119, 173~180頁(1985)に記載の方法に従い、過硫酸アンモニウムを酸化剤としてアニリンを化学酸化重合してポリアニリン(以下PAn)を得た。その後、水酸化ナトリウム水溶液処理、洗浄、乾燥し、N,N-ジメチルホルムアミド(DMF)に溶解させた。ITO薄膜をスパッタリングによって200Åの厚みで付けたガラス基板にPAnのDMF溶液を回転数2000rpmのスピンドルティング法により200Åの厚みで塗布した。その後、200°Cで2時間乾燥した。次いでその上にペリレンを蒸着法によって作成した。蒸着のときの真空度は 5×10^{-4} Torrでペリレンの膜厚は1800Åであった。さらにその上にアルミニウム電極を蒸着してEL素子を完成させた。この素子に電圧45Vを印加したところ、電流密度42mA/cm²の電流が流れ、輝度0.11cd/m²の紫色のEL発光が観察された。輝度

は電流密度に比例していた。

実施例 2

特開平1-9221号公報に記載の方法に従い、2,5-チエニレンジスルホニウムプロミドをアルカリで重合し、メタノールと反応させてポリ-2,5-チエニレンビニレン(PTV)の中間体であるポリ-2,5-チエニレン-メトキシエチレンを得た。ITO薄膜をスパッタリングによって200Åの厚みで付けたガラス基板に、得られたPTV中間体のDMF溶液を回転数2000rpmのスピンドルティング法により700Åの厚みで塗布した。その後、N₂中で200°C、2時間熱処理した。熱処理することによりPTV中間体の膜厚は400Åに減少していた。ここで、赤外吸収スペクトルを測定したところ1100cm⁻¹の中間体特有の吸収ピークがなくなっていたことから、PTV構造を確認し、電荷輸送材料とした。

次に、特開平1-79217の記載の方法に従い、2,5-ジヘプチルオキシ-p-キシリレンプロミドをt-ブロトキシカリウムで縮重合して、ポリ-2,

5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレン(HO-PPV)を得た。このクロロホルム溶液を上記ITO上に塗布したPTV薄膜上に回転数2000rpmのスピンドルティング法により1000Åの厚みで塗布し、発光材料とした。さらに、その上にAl電極を蒸着によって1000Åの厚みで作製した。ITO電極、Al電極には銀ベーストで端子をとり、エポキシ樹脂で固定した。

作製した2層積層型素子に電圧35Vを印加したところ、7mA/cm²の電流密度で、輝度0.12cd/m²の黄橙色の発光が観察された。発光スペクトルのピーク波長は580nmで、HO-PPVスピンドルート薄膜の蛍光のスペクトルと一致していた。また、発光強度は電流密度に比例して増加した。

実施例 3

特開昭59-199746号公報の記載に従い、p-キシリレン-ビス(ジエチルスルホニウムプロミド)を水溶液中、水酸化ナトリウム水溶液を滴下して重合し、ポリ-p-フェニレンビニレン(以下PPV)の中間体であるポリ-p-フェニレンビニ

レン-ビス(ジエチルスルホニウムプロミド)エチレン(以下PPV中間体)水溶液を得た。実施例2においてPTVの中間体のかわりに、得られたPPV中間体を用いて製膜した。製膜条件は、PPV中間体水溶液を回転数2000rpmのスピンドルティング法により600Åの厚みで塗布した。その後、PPV中間体スピンドルート膜を370°Cで2時間熱処理しPPV薄膜とした。熱処理後の膜厚は300Åであった。PPV構造への変化は赤外吸収スペクトルの変化により確認した。これを電荷輸送層とした。さらに、その上に実施例2と同様にしてHO-PPVをスピンドルティングし、Al電極を蒸着してEL素子を完成させた。

作製した2層積層型素子に、電圧30Vを印加したところ、17mA/cm²の電流密度で、輝度0.09cd/m²の黄橙色の発光が確認された。発光スペクトルは実施例2と同様であった。

実施例 4

実施例1と同様にしてPAnを製膜して電荷輸送層とした。さらに、その上に実施例2と同様に

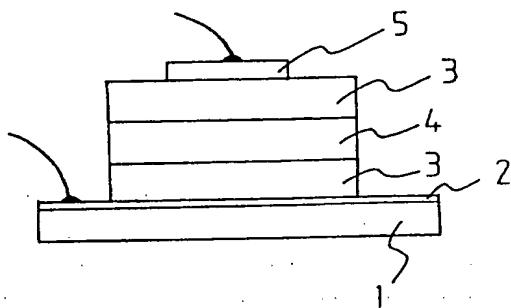
してHO-PPVをスピンドルコートィングし、Al電極を蒸着して素子を完成させた。

作製した2層積層型素子に、電圧50Vを印加したところ、 2mA/cm^2 の電流密度で、輝度 0.04cd/m^2 の黄橙色の発光が確認された。発光スペクトルは実施例2と同様であった。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明における有機エレクトロルミネッセンス素子の一実施例の概念的な断面構造を表す。

1 ……透明基板、2 ……透明電極、3 ……電荷輸送層、4 ……発光層、5 ……電極



第1図

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成10年(1998)10月6日

【公開番号】特開平3-273087

【公開日】平成3年(1991)12月4日

【年通号数】公開特許公報3-2731

【出願番号】特願平2-75225

【国際特許分類第6版】

C09K 11/06

C08G 61/02 NLF

61/12 NLJ

73/00 NTB

H05B 33/14

【F I】

C09K 11/06 Z

C08G 61/02 NLF

61/12 NLJ

73/00 NTB

H05B 33/14

手続補正書(自発)

平成9年3月19日

特許庁長官殿

1. 事件の表示

平成2年特許願第75225号

2. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 大阪市中央区北浜四丁目5番33号

名称 (209)住友化学工業株式会社

代表者 森 英雄

3. 代理人

住所 大阪市中央区北浜四丁目5番33号

名稱 住友化学工業株式会社内

氏名 弁理士(9328)久保山 隆

4. 補正により増加する請求項の数 2

5. 補正の対象

明細書の特許請求の範囲の擴

6. 補正の内容

別紙の通り

以上

別紙

特許請求の範囲

(1) 少なくとも一方が透明または半透明である一对の電極間に発光層および電荷輸送層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、電荷輸送層として一般式(I)

-Ar-B- (1)

A : 基または芳香族炭化水素基、または炭素数4以上のヘテロ環芳香族炭化水素基、

B : -CH=CH-基あるいは-NH-基

で示される繰り返し単位を有する導電性高分子を用いることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

(2) 导電性高分子がポリ-*p*-フェニレンビニレン、ポリ-2, 5-ジアルキル-*p*-フェニレンビニレン、ポリ-2, 5-ジアルコキシ-*p*-フェニレンビニレン、ポリ-2, 5-チエニレンビニレン、ポリアニリンまたはポリアニリン誘導体である請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

(3) 請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、Bがビニレン基であり、かつAが

-フェニレン、2, 5-ジアルキル-*p*-フェニレン、2, 5-ジアルコキシ-*p*-フェニレン、2, 5-チエニレン、2, 6-ナフタレンジイル、炭素数1~22のアルキル基がもしくは二置換した*p*-フェニレン、炭素数1~22のアルキル基が2, 6位に二置換した*p*-フェニレン、または炭素数1~22のアルコキシ基が2, 5位に二置換した*p*-フェニレンであることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

(4) 請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス素子において、導電性高分子が、アニリンまたはアニリン誘導体を、電解離化重合あるいは化学離化重合することにより得られるポリアニリンまたはポリアニリン誘導体であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.